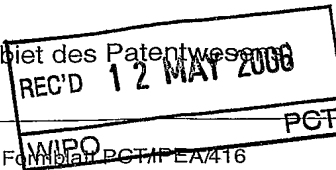



VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)



Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts D80743PC	WEITERES VORGEHEN siehe Formblatt PCT/PEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2005/001705	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 18.02.2005	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 19.02.2004
Internationale Patentklassifikation (IPC) oder nationale Klassifikation und IPC INV. C07C51/347 C07C57/04 B01D3/14 B01J8/00		
Anmelder STOCKHAUSEN GMBH		
<p>1. Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p>3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) insgesamt 6 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (nur an das Internationale Büro gesandt) insgesamt (bitte Art und Anzahl der/des elektronischen Datenträger(s) angeben), der/die ein Sequenzprotokoll und/oder die dazugehörigen Tabellen enthält/enhalten, nur in elektronischer Form, wie im Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll angegeben (siehe Abschnitt 802 der Verwaltungsvorschriften).</p>		
<p>4. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. I Grundlage des Berichts</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. II Priorität</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>		
Datum der Einreichung des Antrags 16.09.2005	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 11.05.2006	
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Kleidermigg, O Tel. +49 89 2399-2143	



Feld Nr. I Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bescheid auf

- ☒ der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde.
- ☐ einer Übersetzung der internationalen Anmeldung in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
 - ☐ internationale Recherche (nach Regeln 12.3 a) und 23.1 b))
 - ☐ Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4 a))
 - ☐ internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 a) und/oder 55.3 a))

2. Hinsichtlich der **Bestandteile*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf *(Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt)*:

Beschreibung, Seiten

1-30 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

1-14 eingegangen am 16.09.2005 mit Schreiben vom 13.09.2005

Zeichnungen, Blätter

1-3 in der ursprünglich eingereichten Fassung

- ☐ einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll

3. ☐ Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung: Seite
- ☐ Ansprüche: Nr.
- ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
- ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
- ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

4. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigelegten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).

- ☐ Beschreibung: Seite
- ☐ Ansprüche: Nr.
- ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
- ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
- ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT
ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT**

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2005/001705

Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)

Ja: Ansprüche 1-14

Nein: Ansprüche

Erfinderische Tätigkeit (IS)

Ja: Ansprüche 1-14

Nein: Ansprüche

Gewerbliche Anwendbarkeit (IA)

Ja: Ansprüche: 1-14

Nein: Ansprüche:

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):

siehe Beiblatt

Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist:

siehe Beiblatt

Punkt V

- D1: DE 197 01 737 A1 (BASF AG, 67063 LUDWIGSHAFEN, DE) 23. Juli 1998 (1998-07-23)
- D2: PATENT ABSTRACTS OF JAPAN Bd. 2003, Nr. 12, 5. Dezember 2003 (2003-12-05) & JP 2004 010678 A (NIPPON SHOKUBAI CO LTD), 15. Januar 2004 (2004-01-15)
- D3: DE 29 01 783 A1 (NIPPON SHOKUBAI KAGAKU KOGYO CO.LTD; NIPPON SHOKUBAI KAGAKU KOGYO CO.,) 2. August 1979 (1979-08-02)

Die vorliegende Anmeldung betrifft ein Verfahren zur Spaltung eines (Meth)Acrylsäure Oligomeren der Struktur (I) (vgl. Anspruch 1), wobei die Oligomeren bei einem Druck von mindestens 10 bar auf eine Temperatur von mindestens 50°C erhitzt werden (Ansprüche 1,5,6,7,9), und ein Spaltnittel vorhanden sein kann (Ansprüche 2-9); sowie die Verwendung der Verbindungen nach Formeln II und III als Spaltnittel bei einem Druck von mindestens 10 bar auf eine Temperatur von mindestens 50°C; eine Vorrichtung zur Herstellung von (Meth)Acrylsäure (Ansprüche 11-13); die Verwendung der Vorrichtung nach Ansprüchen 11-13 zur Herstellung von (Meth)Acrylsäure (Anspruch 14).

D1 (vgl. im ISR zitierte Passagen) stellt den nächstliegenden Stand der Technik dar und unterscheidet sich vom Gegenstand der Ansprüche 1 und 2 dadurch, daß die Spaltung von (Meth)Acrylsäure-Oligomeren bei 1 bar durchgeführt wird. Die in D1 und D3 (vgl. im ISR zitierte Passagen) beschriebenen Vorrichtungen unterscheidet sich vom Gegenstand des Anspruchs 11 dadurch, daß ein mit einer Fördereinheit verbundenes Spaltnittelreservoir sowie die Verwendung eines Entlastungsventils nicht offenbart ist. Die Verwendung von Verbindungen der Formeln II und III Spaltnitteln bei einem Druck von mindestens 10 bar gemäß Anspruch 10 ist im vorliegenden Stand der Technik ebenfalls nicht offenbart.

Als technisches Problem wird die Bereitstellung eines weiteren Verfahrens zur Spaltung von (Meth)Acrylsäure Oligomeren angesehen. Die Lösung wird in den unabhängigen Ansprüchen dar gelegt und betrifft die Verfahrensführung bei einem Druck von mindestens 10 bar. Diese Verfahrensführung bei hohen Drücken ist für den Fachmann ausgehend vom nächstliegenden Stand der Technik von D1 nicht direkt ableitbar ebensowenig wie die

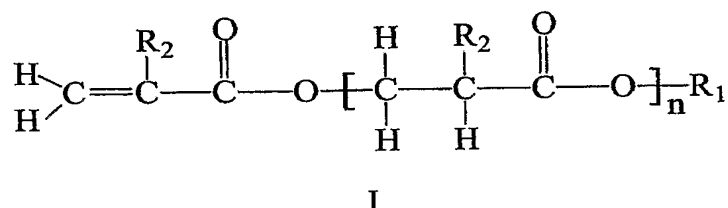
Verwendung eines Entlastungsventils in der Spaltvorrichtung, welches eine Reaktionsführung bei Überdruck zuläßt.

Punkt VII

Der Ausdruck "auf deren Inhalt hiermit als Teil dieser Offenbarung Bezug genommen wird" auf Seite 21 widerspricht Regel 9.1 iv) PCT.

(GEÄNDERTE) PATENTANSPRÜCHE

1. Ein Verfahren zur Spaltung eines (Meth)Acrylsäure-Oligomeren der
5 Struktur I



10 worin

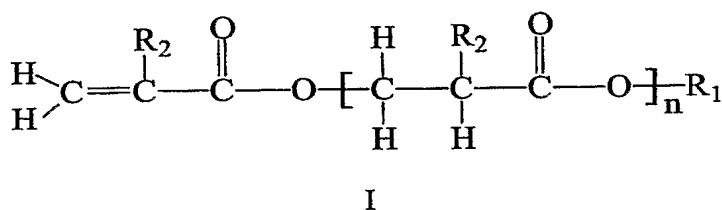
R_1 ein Wasserstoffatom oder eine C_1 - bis C_{10} -Alkylgruppe ist,

R_2 ein Wasserstoffatom oder eine Methylgruppe ist, und

n eine ganze Zahl in einem Bereich zwischen 1 und 200 ist,

15 wobei die (Meth)Acrylsäure-Oligomeren bei einem Druck von mindestens 10 bar auf eine Temperatur von mindestens 50°C erhitzt werden.

2. Verfahren zur Spaltung eines (Meth)Acrylsäure-Oligomeren der Struktur I



20

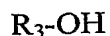
worin

R_1 ein Wasserstoffatom oder eine C_1 - bis C_{10} -Alkylgruppe ist,

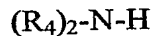
25 R_2 ein Wasserstoffatom oder eine Methylgruppe ist, und

n eine ganze Zahl in einem Bereich zwischen 1 und 200 ist,

mit einem Spaltnittel der Struktur II



5 oder der Struktur III



10 worin

R_3 ein Wasserstoffatom, eine C_1 - bis C_{12} -Alkylgruppe, oder aber eine $-C_xH_{2x}-OH$ -Gruppe ist, wobei x eine ganze Zahl in einem Bereich von 1 bis 12 ist, und

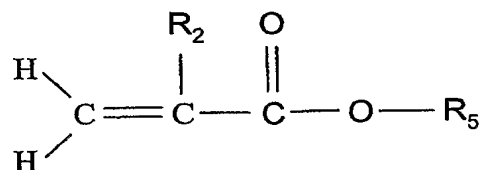
15 R_4 ein Wasserstoffatom oder eine C_1 - bis C_{12} -Alkylgruppe ist, mit der Maßgabe, dass nicht beide R_4 -Gruppen Wasserstoffatome sind,

wobei das (Meth)Acrylsäure-Oligomere mit dem Spaltnittel bei einer Temperatur von mindestens $50^\circ C$ und bei einem Druck von mindestens 20 10 bar in Kontakt gebracht wird.

3. Verfahren nach Anspruch 2, wobei das Spaltnittel und das (Meth)acrylsäure-Oligomer in einem Gewichtsverhältnis Spaltnittel : (Meth)acrylsäure-Oligomer in einem Bereich von 0,01 : 1 bis 10 : 1 25 eingesetzt werden.

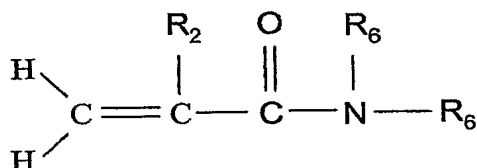
4. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 oder 3, wobei das Spaltnittel Wasser, Ethanol, n-Butanol oder eine Mischung aus mindestens zwei dieser Verbindungen ist.

30 5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei durch die Spaltung eine Verbindung der Struktur IV



oder der Struktur V

5



abgespalten wird,

10

worin

R_6 ein H-Atom oder eine C_1 - C_{12} -Alkylgruppe ist, mit der Maßgabe, dass nicht beide R_6 -Gruppen Wasserstoffatome sind,

R_5 ein H-Atom, eine C_1 - C_{12} -Alkylgruppe oder eine $-\text{C}_x\text{H}_{2x}-\text{OH}$ -Gruppe ist, wobei x eine ganze Zahl in einem Bereich von 1 bis 12 ist, und

15

R_2 ein H-Atom oder eine Methylgruppe ist.

20

6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die (Meth)Acrylsäure-Oligomere in Form einer Zusammensetzung eingesetzt werden, die während des Verfahrens der (Meth)Acrylsäure-Synthese umfassend die Verfahrensschritte

25

- i) katalytische Oxidation von C_3 - oder C_4 -Ausgangsverbindungen in der Gasphase,
- ii) Absorption oder Kondensation oder beides der gebildeten (Meth)Acrylsäure in Wasser, und
- iii) Aufarbeitung der so erhaltenen wässrigen (Meth)Acrylsäurelösung durch Destillation

als Sumpfprodukt der destillativen Aufarbeitung der (Meth)Acrylsäurelösung in Verfahrensschritt iii) erhalten wird.

- 5 7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die (Meth)Acrylsäure-Oligomere in Form einer Zusammensetzung eingesetzt werden, die während des Verfahrens der (Meth)Acrylsäure-Synthese Synthese umfassend die Verfahrensschritte
- 10 I) katalytische Oxidation von C₃- oder C₄-Ausgangsverbindungen in der Gasphase,
- II) Absorption oder Kondensation oder beides der gebildeten (Meth)Acrylsäure in Wasser zu einem Absorptionsprodukt,
- III) gegebenenfalls Aufarbeitung der so erhaltenen wässrigen (Meth)Acrylsäurelösung durch Destillation, und
- 15 IV) Reinigung des Absorptionsprodukts oder der durch Destillation erhaltenen, konzentrierten (Meth)Acrylsäurelösung oder beides durch Kristallisation,
- als Mutterlauge bei der Reinigung durch Kristallisation in Verfahrensschritt IV) erhalten wird.
- 20 8. Verfahren nach einem der Ansprüche 2 bis 7, wobei die (Meth)Acrylsäure-Oligomere mit dem Spaltmittel bei einer Temperatur von mindestens 250°C in Kontakt gebracht wird.
- 25 9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Spaltung in Gegenwart eines Katalysators erfolgt.
- 30 10. Verwendung von Verbindungen der Struktur II oder der Struktur III, wie im Anspruch 2 definiert, als Spaltmittel zur Spaltung von (Meth)Acrylsäure-Oligomeren der Struktur I bei einer Temperatur von mindestens 50°C und bei einem Druck von mindestens 10 bar.

11. Vorrichtung zur Herstellung von (Meth)Acrylsäure umfassend als fluidleitend miteinander verbundene Komponenten eine (Meth)Acrylsäure-Syntheseeinheit, einen Quenchabsorber, eine Destillationsvorrichtung und/oder eine Kristallisationsvorrichtung sowie eine (Meth)Acrylsäure-Oligomerenspaltvorrichtung, wobei die (Meth)Acrylsäure-Oligomerenspaltvorrichtung ein Spaltnittelreservoir (6), mindestens eine erste und eine zweite Fördereinheit, eine Mischvorrichtung (5), eine Heizvorrichtung (10), einen Spaltreaktor und mindestens eine erste bis fünfte Führung aufweist, wobei
- 5
- 10 (β1) eine Eduktpumpe (4) als die erste Fördereinheit einen Zulauf aufweist, der eine Zusammensetzung beinhaltend ein (Meth)Acrylsäure-Oligomer, wie im Anspruch 1 oder 2 definiert, führt;
- (β2) das Spaltnittelreservoir (6) mit einer Spaltnitteldruckpumpe (9) als zweite Fördereinheit über eine Spaltnittelleitung (7) als erste Führung
- 15 verbunden ist;
- (β4) die erste und die zweite Fördereinheit (4,9) mit der Mischvorrichtung (5) über eine zweite und dritte Führung verbunden sind;
- (β4) die Mischvorrichtung (5) mit der Heizvorrichtung (10) über eine vierte Führung verbunden ist;
- 20 (β5) die Heizvorrichtung (10) mit dem Spaltreaktor über eine fünfte Führung verbunden ist.,
- wobei die Oligomerenspaltvorrichtung ein Entlastungsventil (12) aufweist, über welches das in der Heizvorrichtung (10) befindliche Spaltprodukt der (Meth)Acrylsäure-Oligomer-Spaltung entspannt werden kann.
- 25
12. Vorrichtung nach Anspruch 11, wobei die Zusammensetzung, die im Zulauf zur ersten Fördereinheit geführt ist, der im Anspruch 6 definierten Zusammensetzung entspricht.
- 30 13. Vorrichtung nach Anspruch 11, wobei die Zusammensetzung, die im Zulauf zur ersten Fördereinheit geführt ist, der im Anspruch 6 oder 7 definierten Zusammensetzung entspricht.

14. Verwendung einer Vorrichtung nach einem der Ansprüche 11 bis 13 zur Herstellung von (Meth)Acrylsäure.